

①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE  
INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE  
PARIS

①⑪ N° de publication :

**2 774 398**

(à n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction)

②① N° d'enregistrement national :

**98 01163**

⑤① Int Cl<sup>6</sup> : C 23 F 11/14, C 07 C 237/06, 323/52

⑫

## DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

**A1**

②② Date de dépôt : 02.02.98.

③⑦ Priorité :

④③ Date de mise à la disposition du public de la  
demande : 06.08.99 Bulletin 99/31.

⑤⑥ Liste des documents cités dans le rapport de  
recherche préliminaire : *Se reporter à la fin du  
présent fascicule*

⑥⑦ Références à d'autres documents nationaux  
apparentés :

⑦① Demandeur(s) : *CECA SA Societe anonyme* — FR.

⑦② Inventeur(s) : *POU TONG EAK et FOUQUAY STE-  
PHANE.*

⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire(s) : *ELF ATOCHEM SA.*

⑤④ INHIBITEURS DE LA CORROSION CARBONIQUE DU FER ECOCOMPATIBLES.

⑤⑦ Des compositions dans lesquelles sont associées des  
polyméthylène-polyaminodipropionamides à des mercapto-  
acides développent une remarquable synergie dans leur  
fonction d'inhibition de la corrosion carbonique de l'acier et  
dans leur écocompatibilité.

**FR 2 774 398 - A1**



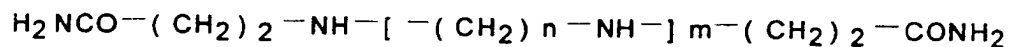
5

Dans la production du pétrole et du gaz, la corrosion due au gaz carbonique, connue sous le nom de corrosion carbonique, a lieu en fond de puits, où la température se situe en général vers 60°C ou plus, dans les canalisations de surface et dans les installations de raffinage du brut. On y remédie habituellement par utilisation d'inhibiteurs de corrosion à base de sels d'amines, de sels d'ammonium quaternaire, d'imidazolines ou d'esters phosphoriques. Ces composés ne sont pas entièrement satisfaisants parce qu'écotoxiques.

Dans la demande de brevet français n°9701298, il a été proposé d'utiliser les polyméthylène-polyamino-dipropionamides comme inhibiteurs de corrosion non écotoxiques pour l'environnement marin.

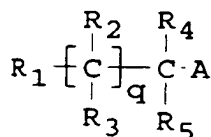
On vient maintenant de trouver une activité synergique inattendue quant à l'établissement d'une inhibition de la corrosion carbonique du fer dans les milieux aqueux, pour des compositions aqueuses associant un polyméthylène-polyamino-dipropionamide et un composé mercaptoacide ; de façon plus explicite, pour des compositions comportant comme matière active

- au moins l'un des polyméthylène-polyaminodipropionamides correspondant à la formule :



dans laquelle m est un nombre entier pouvant prendre toute valeur de 1 à 4, qui représente le nombre de maillons polyméthylène-amino - (CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>-NH- , n pouvant avoir dans chaque maillon polyméthylène-amino une valeur entière de 2 à 6,

- au moins un mercaptoacide répondant à la formule générale



35

avec

q = 0 à 3,

R<sub>1</sub>=H ou SH,

R<sub>2</sub> et R<sub>3</sub>, ensemble ou indépendamment = C<sub>1-4</sub>, CON(R<sub>6</sub>)(R<sub>7</sub>), COOR<sub>8</sub>,

40

- 5  $R_4$  et  $R_5$ , ensemble ou indépendamment = OH,  $NH_2$ , ou SH quand  $R_1 \neq SH$ ,  
 $R_6$  et  $R_7$ , ensemble ou indépendamment = H,  $C_{1-4}$ ,  
 $R_8$  = H,  $C_{1-8}$ ,  
 $R_2$  à  $R_5$  pouvant être inclus dans un cycle aliphatique,  
10  $R_3$  et  $R_5$  pouvant être inclus dans un cycle aromatique lorsque  $q=1$ ,  
A étant un groupe acide  $COOH$ ,  $SO_3H$ ,  $OSO_3H$ ,  $PO_3H$  ou  $OPO_3H$ ,  
le rapport pondéral entre le ou les composants mercaptoacides  
et le ou les composants dipropionamides étant compris entre  
15 0,3 et 2.

- Les polyméthylène-polyamino-dipropionamides s'obtiennent aisément par condensation d'acrylamide sur des bases polyméthylène-polyamines, par exemple les bases EDA, DETA, TETA, TEPA, HEPA en série éthylèneimine, les bases PDA, DPTA  
20 (Norspermidine) en série propylèneimine, ou encore des composés hybrides éthylène/propylèneimine.

On les caractérise parfaitement par spectrographie RMN. Ils offrent déjà en eux-mêmes une très faible écotoxicité marine (50 à 100 ppm sur *Skeletonema costatum*).

- 25 Les mercaptoacides utiles pour l'invention, tels que décrits plus haut, sont très généralement des produits connus.

- On préfère les mercaptoacides carboxyliques, par exemple l'acide mercaptoacétique  $HSCH_2COOH$ , RN=[68-11-1], ou l'acide  
30 mercaptopropionique  $HSCH_2CH_2COOH$ , RN=[107-96-0]

- Les compositions inhibitrices de l'invention sont des compositions dans lesquelles les composants mercaptoacides, seuls ou en mélange, et dipropionamides sont présents dans des rapports pondéraux de 0,3 à 2, mais le maximum  
35 d'efficacité inhibitrice se trouve pour des rapports pondéraux de 0,5 et 1.

- Mais ce qui est encore plus étonnant, c'est que cette synergie se manifeste également au niveau de l'écotoxicité, les compositions synergiques de l'invention se révélant de  
40 façon inattendue beaucoup moins écotoxiques que chacun de leurs composants pris isolément.

Les compositions selon l'invention sont avantageusement présentées sous forme de solutions aqueuses à 10 % - 75 % de matière active, qu'on obtient très simplement par mélange à froid ou à tiède des constituants. Elles sont également un  
5 objet de la présente invention.

Les compositions inhibitrices selon l'invention peuvent être utilisées en injection en continu aussi bien qu'en traitement séquencé. En continu, les dosages utiles sont compris entre 3 ppm et 100 ppm exprimés poids de matière  
10 active, mercaptoacide + dipropionamide par rapport au milieu corrosif. En traitement séquencé, on peut l'utiliser à la dose de 1 % à 10 % par rapport au fluide porteur, l'eau par exemple.

L'invention trouve une application importante pour la  
15 protection de l'acier contre la corrosion  $\text{CO}_2$  dans l'industrie de la production pétrolière. Les compositions synergiques de l'invention donnent également satisfaction comme inhibiteurs de la corrosion sulfhydrique du fer.

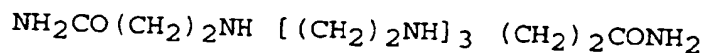
Les exemples qui suivent, sont destinés à mieux faire  
20 comprendre l'invention et ses avantages.

#### EXEMPLES

Dans les exemples, le polyméthylène-polyamino-  
dipropionamide utilisé a été le dipropionamide sur base TETA  
25 de formule

$\text{NH}_2\text{CO}(\text{CH}_2)_2\text{NH} [(\text{CH}_2)_2\text{NH}]_3 (\text{CH}_2)_2\text{CONH}_2$   
( $\text{C}_{12}\text{H}_{28}\text{N}_6\text{O}_2$  ;  $M = 288,39 \text{ g} \cdot \text{mol}^{-1}$ ), dont les caractéristi-  
ques RMN sont rapportées au tableau ci-joint.

30 Tableau des caractéristiques RMN du dipropionamide



|     |    |     |     |    |     |     |    |     |     |    |     |     |    |     |     |    |     |
|-----|----|-----|-----|----|-----|-----|----|-----|-----|----|-----|-----|----|-----|-----|----|-----|
|     | 1  | 2   | 3   |    | 4   | 5   |    | 6   | 6   |    | 5   | 4   |    | 3   | 2   | 1  |     |
| H2N | CO | CH2 | CH2 | NH | CH2 | CH2 | NH | CH2 | CH2 | NH | CH2 | CH2 | NH | CH2 | CH2 | CO | NH2 |

$^1\text{H}$  RMN ( $\text{D}_2\text{O}$ ) : 2,34 (t, 4H,  $\text{H}_2$ ) ; 2,58 (s, 12H,  $\text{H}_4$  à  $\text{H}_6$ ) ;  
2,73 (t, 4H,  $\text{H}_3$ ).

$^{13}\text{C}$  RMN ( $\text{D}_2\text{O}$ ) : 36,7 ( $\text{C}_2$ ) ; 46,7 ( $\text{C}_3$ ) ; 49,6 (m,  $\text{C}_4$  à  $\text{C}_6$ ) ; 179,6 ( $\text{C}_1$ ).

5

**EXEMPLE 1** : propriétés inhibitrices de l'association polyaminodipropionamide - acide mercaptoacétique

Pour évaluer l'efficacité inhibitrice de corrosion des produits mis en oeuvre pour réduire la corrosion en milieu saturé en gaz carbonique, la procédure expérimentale utilisée a été la suivante.

Comme milieu corrosif, on utilise une solution de type NACE contenant 50 g/l de NaCl et de 0,25 g/l d'acide acétique saturée par barbotage en continu de  $\text{CO}_2$ .

On opère dans une cellule de Pyrex thermostatée de 600 ml comportant outre une entrée et une sortie de gaz, trois électrodes assujetties à la cellule par des rodages. Elles sont composées d'une électrode de travail en acier au carbone dont la surface de contact avec la solution corrosive est de  $1\text{ cm}^2$ , d'une électrode de référence (électrode au calomel saturé) et d'une contre électrode en platine à très grande surface en contact avec la solution corrosive. On place dans la cellule 500 ml de la solution corrosive, on introduit ensuite la contre électrode et l'électrode de référence. On désaère la solution par barbotage d'azote pendant une heure et on la sature en  $\text{CO}_2$  par barbotage par ce gaz pendant au moins une heure supplémentaire. Pour bien assurer la saturation en  $\text{CO}_2$ , on laisse barboter ce gaz pendant toute la durée de l'expérience.

La température de l'essai est de  $80^\circ\text{C}$ .

On mesure la vitesse de corrosion instantanée  $V_{\text{corr}}$  par mesure de résistance de polarisation, méthode bien connue de l'homme du métier.

L'acide mercaptoacétique utilisé dans l'essai est l'acide thioglycolique de Elf atochem. Le tableau 1 donne les valeurs de la vitesse de corrosion de l'acier en fonction de composition inhibitrice (compositions pondérales, rapport

pondéral mercaptoacide/dipropionamide, pH de la formule). Les compositions d'essai sont utilisées à la dose uniforme de 15 ppm en matière active, exprimés en poids de l'ensemble des composants actifs, c'est-à-dire acide mercaptoacétique + 5 dipropionamide.

Tableau 1

Vitesse de corrosion résiduelle en présence de 15 ppm de matières actives des formules étudiées.

Milieu corrosif : Solution contenant 50 g/l de NaCl + 0,25 g/l de  $\text{CH}_3\text{COOH}$  saturé en  $\text{CO}_2$

Température de travail : 80°C

Vitesse de corrosion du blanc = 20 mm/an

| Formule N°                   | 1  | 2    | 3    | 4    | 5     | 6     | 7     | 8    |
|------------------------------|----|------|------|------|-------|-------|-------|------|
| Acide mercaptoacétique       | 30 | 17,5 | 16   | 15   | 6,85  | 4,5   | 1,45  |      |
| Dipropionamide               |    | 12,5 | 14   | 15   | 16,45 | 16,85 | 17,39 | 30   |
| Eau                          | 70 | 70   | 70   | 70   | 76,70 | 78,65 | 81,16 | 70   |
| pH                           | 2  | 3,39 | 4,77 | 6,49 | 7,6   | 8,7   | 9,25  | 10,4 |
| Rapport pondéral Acide/Base  |    | 1,4  | 1,42 | 1    | 0,42  | 0,27  | 0,08  |      |
| Vitesse de corrosion (mm/an) | 11 | 6,5  | 4,7  | 4,5  | 5     | 6,1   | 5,6   | 9,5  |

On remarque plus particulièrement la formule n°4, dont le rapport pondéral acide/base des 15 ppm de sa matière active est égal à 1 et qui permet de réduire la vitesse de corrosion résiduelle à 4,5 mm/an.

EXEMPLE 2 : Propriétés inhibitrices de l'association polyméthylène-polyamino-dipropionamide - acide mercaptopropionique

On opère selon le mode opératoire décrit dans l'exemple 5 1. Dans le présent exemple, le mercaptoacide utilisé est l'acide mercaptopropionique d'Elf Atochem.

Le tableau 2 récapitule les informations de composition de l'inhibiteur et les vitesses de corrosion mesurées.

| Tableau 2  |    |       |       |       |       |       |      |
|--|----|-------|-------|-------|-------|-------|------|
| Vitesse de corrosion résiduelle en présence de 15 ppm de matière active des formules étudiées.                     |    |       |       |       |       |       |      |
| Milieu corrosif : solution contenant 50 g/l de NaCl + 0.25 g/l de CH <sub>3</sub> COOH, saturée en CO <sub>2</sub> |    |       |       |       |       |       |      |
| Température de travail : 80°C  |    |       |       |       |       |       |      |
| Vitesse de corrosion du blanc = 20 mm/an   |    |       |       |       |       |       |      |
| Formule n°   | 9  | 10    | 11    | 12    | 13    | 14    | 15   |
| Acide mercapto-propionique   | 30 | 39,28 | 24,78 | 8,10  | 5,50  | 2,30  |      |
| Dipropionamide   |    | 10,72 | 13,27 | 16,20 | 16,70 | 17,25 | 30   |
| Eau  | 70 | 50    | 61,95 | 75,70 | 77,80 | 80,45 | 70   |
| pH   | 2  | 3,83  | 5,27  | 6,73  | 8     | 9,33  | 10,4 |
| Rapport pondéral Acide/Base  |    | 3,66  | 1,87  | 0,5   | 0,33  | 0,13  |      |
| Vitesse de corrosion (mm/an)   | 10 | 5,5   | 5,8   | 4,5   | 5     | 5,5   | 9,5  |

10

On remarque plus particulièrement la formule n° 12, à laquelle correspond la vitesse de corrosion résiduelle la plus faible (4,5 mm/an).

EXEMPLE 3 : Formules concentrées

Les compositions de l'invention se prêtent à la formulation sous des présentations relativement concentrées. Les compositions 16 et 17 rapportées au tableau 3 avec leurs caractéristiques de composition et d'efficacité inhibitrice titrent 50% de matière active et sont des solutions fluides.

Le tableau 3 donne les compositions et les vitesses de corrosion résiduelle en présence de 15 ppm active 50 ppm de nouvelles formules, dans le milieu corrosif étudié à 80°C.

10

| Tableau 3  |       |       |
|--|-------|-------|
| Vitesse de corrosion résiduelle en présence de 25 ppm de matière active des formules étudiées.                     |       |       |
| Milieu corrosif : solution contenant 50 g/l de NaCl + 0.25 g/l de CH <sub>3</sub> COOH, saturée en CO <sub>2</sub> |       |       |
| Température de travail : 80°C  |       |       |
| Formule  | n° 16 | n° 17 |
| Acide mercaptoacétique   | 25    |       |
| Acide mercaptopropionique  |       | 17,5  |
| Dipropionamide   | 25    | 32,5  |
| Eau  | 50    | 50    |
| Rapport Acide/Base   | 1     | 0,54  |
| Vitesse de corrosion résiduelle (mm/an)  | 1,8   | 1,0   |

EXEMPLE 4 : ECOTOXICITE

Les mesures d'écotoxicité ont été réalisées sur une bactérie (*Photobacterium phosphoreum*) selon le test Microtox, AFNOR NF T90-320, et sur une algue (*Skeletonema costatum*) selon la méthode ISO/DIS 10253. La toxicité selon Microtox est exprimée en CL<sub>50</sub> (concentration létale en mg/l pour détruire 50% de la population en 15 minutes) ; la toxicité selon ISO/DIS 10253 est exprimée en CE<sub>50</sub> (concentration



effective en mg/l pour inhiber la croissance de 50 % de la population en 72 heures).

Le tableau ci-dessous donne les toxicités Microtox et sur *Skeletonema costatum* des formules étudiées :

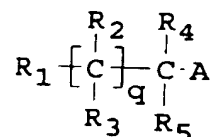
5

| Produit                               | Ecotoxicité<br>"Microtox"<br>CE50 (mg/l) | Ecotoxicité<br><i>S. costatum</i><br>CE (mg/l) |
|---------------------------------------|--|--|
| acide mercaptoacétique<br>(à 100%)    | 45                                       | >300   |
| acide mercaptopropionique<br>(à 100%) | 450                                      | 97   |
| Dipropionamide (100%)                 | 127                                      | 672  |
| Formule n°16                          | 1350                                     | 2289   |
| Formule n°17                          | 22000                                    | 980  |

5 REVENDEICATIONS

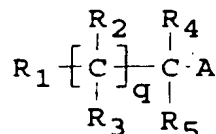
1. Procédé pour limiter la corrosion carbonique de l'acier dans les milieux aqueux, caractérisé en ce que l'on utilise, à titre d'inhibiteur de corrosion non écotoxique, une composition aqueuse comportant comme matière active
- 10 - au moins l'un des polyméthylène-polyaminodipropionamides correspondant à la formule :

- $$\text{H}_2\text{NCO}-(\text{CH}_2)_2-\text{NH}-[-(\text{CH}_2)_n-\text{NH}-]_m-(\text{CH}_2)_2-\text{CONH}_2$$
- dans laquelle m est un nombre entier pouvant prendre toute
- 15 valeur de 1 à 4, qui représente le nombre de maillons polyméthylène-amino  $-(\text{CH}_2)_n-\text{NH}-$ , n pouvant avoir dans chaque maillon polyméthylène-amino une valeur entière de 2 à 6,
- au moins un mercaptoacide répondant à la formule générale



- 20 avec
- $q = 0 \text{ à } 3$ ,
- $\text{R}_1 = \text{H}$  ou  $\text{SH}$ ,
- $\text{R}_2$  et  $\text{R}_3$ , ensemble ou indépendamment =  $\text{C}_{1-4}$ ,  $\text{CON}(\text{R}_6)(\text{R}_7)$ ,
- 25  $\text{COOR}_8$ ,
- $\text{R}_4$  et  $\text{R}_5$ , ensemble ou indépendamment =  $\text{OH}$ ,  $\text{NH}_2$ , ou  $\text{SH}$  quand  $\text{R}_1 \neq \text{SH}$ ,
- $\text{R}_6$  et  $\text{R}_7$ , ensemble ou indépendamment =  $\text{H}$ ,  $\text{C}_{1-4}$ ,
- $\text{R}_8 = \text{H}$ ,  $\text{C}_{1-8}$ ,
- 30  $\text{R}_2$  à  $\text{R}_5$  pouvant être inclus dans un cycle aliphatique,
- $\text{R}_3$  et  $\text{R}_5$  pouvant être inclus dans un cycle aromatique lorsque  $q=1$ ,
- A étant un groupe acide  $\text{COOH}$ ,  $\text{SO}_3\text{H}$ ,  $\text{OSO}_3\text{H}$ ,  $\text{PO}_3\text{H}$  ou  $\text{OPO}_3\text{H}$ ,
- le rapport pondéral entre le ou les composants thioacides et
- 35 le ou les composants dipropionamides étant compris entre 0,3 et 2.

- 5            2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mercaptoacide est un acide mercaptocarboxylique



- 10            3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mercaptoacide est l'acide mercaptoacétique.

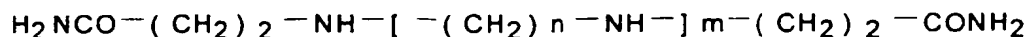
4. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le mercaptoacide est l'acide mercaptopropionique.

- 15            5. Procédé selon l'une ou l'autre des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que la composition inhibitrice est utilisée en traitement continu à raison de 3 à 100 ppm, exprimées en poids des matières actives, mercaptoacides + polyméthylène-polyaminodipropionamides, par rapport au poids du milieu corrosif.

- 20            6. Procédé selon l'une ou l'autre des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que la composition inhibitrice est utilisée en traitement séquentiel à raison de 1 % à 10 %, exprimés en poids des matières actives, mercaptoacides + polyméthylène-polyaminodipropionamides, par rapport au fluide porteur.

7. Compositions inhibitrices pour limiter la corrosion carbonique de l'acier dans les milieux aqueux, constituées d'une solution aqueuse comportant

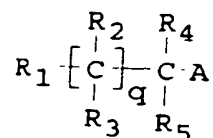
- 25            - au moins l'un des polyméthylène-polyaminodipropionamides correspondant à la formule :



dans laquelle m est un nombre entier pouvant prendre toute valeur de 1 à 4, qui représente le nombre de maillons polyméthylène-amino  $-(\text{CH}_2)_n-\text{NH}-$ , n pouvant avoir dans chaque

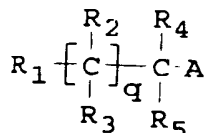
- 35            maillon polyméthylène-amino une valeur entière de 2 à 6,

- 5 - au moins un mercaptoacide répondant à la formule générale



avec

- 10  $q = 0$  à  $3$ ,  
 $R_1 = H$  ou  $SH$ ,  
 $R_2$  et  $R_3$ , ensemble ou indépendamment =  $C_{1-4}$ ,  $CON(R_6)(R_7)$ ,  $COOR_8$ ,  
 $R_4$  et  $R_5$ , ensemble ou indépendamment =  $OH$ ,  $NH_2$ , ou  $SH$  quand  
15  $R_1 \neq SH$ ,  
 $R_6$  et  $R_7$ , ensemble ou indépendamment =  $H$ ,  $C_{1-4}$ ,  
 $R_8 = H$ ,  $C_{1-8}$ ,  
 $R_2$  à  $R_5$  pouvant être inclus dans un cycle aliphatique,  
 $R_3$  et  $R_5$  pouvant être inclus dans un cycle aromatique lorsque  
20  $q=1$ ,  
 $A$  étant un groupe acide  $COOH$ ,  $SO_3H$ ,  $OSO_3H$ ,  $PO_3H$  ou  $OPO_3H$ ,  
le rapport pondéral entre le ou les composants thioacides et  
le ou les composants dipropionamides étant compris entre  $0,3$   
et  $2$ .  
25 la teneur pondérale en composants actifs, dipropionamides et  
thioacides étant comprise entre  $10$  et  $75\%$ .  
8. Compositions selon la revendication 7, caractérisées  
en ce que le mercaptoacide est un acide mercaptocarboxylique



30

9. Compositions selon la revendication 7, caractérisées  
en ce que le mercaptoacide est l'acide mercaptoacétique.  
10. Compositions selon la revendication 7, caractérisées  
en ce que le mercaptoacide est l'acide mercaptopropionique.

REPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL  
de la  
PROPRIETE INDUSTRIELLE

**RAPPORT DE RECHERCHE  
PRELIMINAIRE**

établi sur la base des dernières revendications  
déposées avant le commencement de la recherche

N° d'enregistrement  
national

FA 553186  
FR 9801163

| DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS  |  | Revendications<br>concernées<br>de la demande<br>examinée |
|--|--|---|
| Catégorie  | Citation du document avec indication, en cas de besoin,<br>des parties pertinentes                                       |   |
| A  | US 3 048 620 A (SPIVACK J. D.) 7 août 1962<br>* colonne 4, ligne 45-68 *<br>* colonne 1, ligne 52 - colonne 2, ligne 6 * | 1,7   |
| A  | FR 2 528 061 A (GREAT LAKES CHEMICAL CORP)<br>9 décembre 1983<br>* revendication 1 *                                     | 1,7   |
| A  | US 2 865 817 A (CLAUSEN I. A.)<br>23 décembre 1958<br>* exemple XXVI; tableau III *                                      |   |
| A  | US 3 775 320 A (VIGO M ET AL)<br>27 novembre 1973<br>* revendication 1 *   |   |
|  |  | DOMAINES TECHNIQUES<br>RECHERCHES (Int.CL.8)              |
|  |  | C23F<br>E21B  |
| Date d'achèvement de la recherche  |  | Examineur   |
| 12 octobre 1998  |  | Torfs, F  |
| <p><b>CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES</b></p> <p>X : particulièrement pertinent à lui seul<br/>Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie<br/>A : pertinent à l'encontre d'au moins une revendication ou arrière-plan technologique général<br/>O : divulgation non-écrite<br/>P : document intercalaire</p> <p>T : théorie ou principe à la base de l'invention<br/>E : document de brevet bénéficiant d'une date antérieure à la date de dépôt et qui n'a été publié qu'à cette date de dépôt ou qu'à une date postérieure.<br/>D : cité dans la demande<br/>L : cité pour d'autres raisons<br/>&amp; : membre de la même famille, document correspondant</p> |  |   |

3

EPO FORM 1503 03.82 (POMC19)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**